

新規なスピン量子十字構造素子の輸送特性に関する 理論および実験研究

著者	近藤 憲治
号	57
学位授与機関	Tohoku University
学位授与番号	工第2227号
URL	http://hdl.handle.net/10097/61685

氏 名	こんどう けんじ 近藤 憲治
授 与 学 位	博士（工学）
学 位 授 与 年 月 日	平成 25 年 3 月 6 日
学位授与の根拠法規	学位規則第 4 条第 2 項
最 終 学 歴	平成 15 年 3 月 東京大学大学院理学系研究科物理学専攻 博士課程 単位取得退学
学 位 論 文 題 目	新規なスピン量子十字構造素子の輸送特性に関する理論および実験研究
論 文 審 査 委 員	主査 東北大学教授 白井正文 東北大学教授 佐橋政司 東北大学教授 佐久間昭正

論文内容要旨

近年、リソグラフィーが解像限界に近づつつある CMOS device の代替デバイスとして、電子の電荷だけでなく、その内部自由度であるスピンを制御することにより、Beyond CMOS の候補となるデバイスを作製しようとする試みが盛んである。本論文では、リソグラフィーの限界を破るために、膜厚方向の制御性が、すでに原子層レベルに到達していることから、発想を変えて、絶縁性の基板上に金属や半導体をサブ nm から 20 nm まで成長させた後に、そのエッジを重ねることで、リソグラフィーフリーで、ナノスケールの接合を作製することを可能にし、かつその接合部に半導体や有機分子を挟むことにより、様々な機能を備えるデバイスとなりうる新規なデバイスであるスピン量子十字構造デバイス (Spin Quantum Cross Structure (SQCS)) を提案する。そして、このデバイスの予想される輸送特性ならびに予想される様々な機能を理論的に明らかにし、試作実験を行った。SQCS 素子の解析には、Anderson Hamiltonian を用いて、スピン伝導の一般式を得た。それを使用して、接合部の分子と電極の結合が、弱結合時ならびに強結合時における電流・電圧特性を得た。また、磁気抵抗比の計算を行い、結合定数を用いた綺麗な関係式を得る事が出来た。機能デバイスとしての側面から、熱電輸送特性に関しても計算を行い、この素子が、スピン依存熱電池としても機能することを示した。さらに接合部に反転対称性の無い化合物半導体を挟んだ場合に、半導体部で 3 次の Dresselhaus スピン軌道相互作用がある場合の磁気抵抗比の膜厚依存性、スピン軌道相互作用定数依存性についても調べ、SQCS 素子がスピン分極率を上げるスピントリカとして機能することを明らかにした。

第 1 章では本研究の背景と構成を述べた。

第 2 章では本研究の主題であるスピン量子十字構造素子の理論と実験について記述した。この章では、スピン量子十字構造素子の輸送特性を明らかにするために、Anderson Hamiltonian を用いて、デバイスをモデル化し、そのスピン伝導特性の定式化を行った。まず、スピン量子十字構造素子の構造を説明する。図 1 に概念図を示す。図 1(a) のように電極を 1 ~ 20 nm に堆積させたものをそのエッジとエッジを対向させることによって、ナノスケールの接合を実現させ、光学リソグラフィーを超えた接合を実現可能にし、また接合部の面積が小さいため、パルスティック伝導を実現出来ると考えた。図 1(b) はその上方からみた図で、電極を回転させることにより、コリニア、ノンコリニア磁性を制御

出来る。図 1(c),(d)は計算に用いたモデルである。図 1 (c)のようなモデルにおいて、2 準位分子を挟んだ時の SQCS 素子の電流・電圧特性をノンコリニアな磁性をもつ強磁性電極に対して導出する。その際に、分子を通過するときに伝導電子のスピンのフリップする可能性も考慮する。Anderson Hamiltonian でモデル化して、非平衡グリーン関数法を用いてスピン伝導の一般式を磁化の極角 θ と方位角 ϕ を両方考慮して求めた。その結果、スピン伝導の一般式は、方位角 ϕ の依存性を含んではおらず、極角 θ だけを含んでいることが分かった。方位

角 ϕ の依存性は、分子の自己エネルギー $\cdot \Sigma r^{\uparrow\downarrow}$ ($\Sigma r^{\downarrow\uparrow}$) に実は含まれていることが今回の研究でわかった。しかしながら、それらは伝導の式を導く際に、グリーン関数の絶対値を取るために完全にキャンセルされてしまうため、方位角依存性が消えることがわかった。すなわち、極角 θ だけが電子輸送に影響を与える。理論解析の結果得られたスピン伝導の一般式は式(1)ようになる。この式を用いて、電流・電圧特性の極角 θ 依存性を求めた結果、極角 θ に対して、電流のステップ位置は変化せずに、電流値のみが変化することが確認できた。これらの結果は、スピン量子十字構造素子のメリットを示

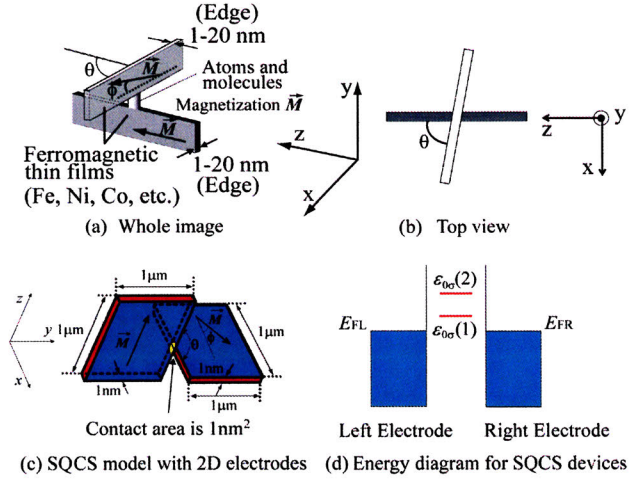


図 1 スピン量子十字構造素子の概念図

$$I = \frac{e}{h} \int_{E_{FR}}^{E_{FR}+eV} d\epsilon \sum_i [\Gamma_L^{\uparrow\uparrow} \Gamma_R^{\uparrow\uparrow} (|G_i^{\uparrow\uparrow}|^2 + |G_i^{\uparrow\downarrow}|^2) + \Gamma_L^{\downarrow\downarrow} \Gamma_R^{\downarrow\downarrow} (|G_i^{\downarrow\downarrow}|^2 + |G_i^{\downarrow\uparrow}|^2)] \times [f(\epsilon - eV - E_{FR}) - f(\epsilon - E_{FR})]. \quad (1)$$

しており、将来、微小電気機械素子(micro-electro-mechanical systems (MEMS))を用いることで、スピン量子十字構造素子の極角 θ を変化させることで、この素子を多値メモリとして役立たせることが出来ることを示している。また、これらの理論解析は、暗にバリスティック伝導を仮定しているが、それも、スピン量子十字構造素子は、薄膜をエッジで接触させたナノスケール接合のため、室温で金属の平均自由行程よりもずっと狭い接合を作製できるため、バリスティック伝導を室温で実現できるからである。式中の結合強度 $\Gamma_{R(L)}$ の大きさが室温より大きい場合を strong coupling と呼び、小さい場合を weak coupling と呼ぶことにする。さらに、室温より非常に大きな結合強度の場合を strong coupling limit と呼ぶことにする。分子でのスピンのフリップが起こらないとして、電極の磁化がコリニアな場合に、式(1)を利用して求めた電流・電圧特性を図 3 に示す。図 3(a)、(b)、(c)に結合定数が、weak coupling (結合強度 $\Gamma=1.57\text{meV}$ に相当) と strong coupling (結合強度 $\Gamma=39.27\text{meV}$ に相当) と strong coupling limit (結合強度 $\Gamma=3927\text{meV}$ に相当) の場合の I - V 特性を示す。weak coupling の時には室温であってもシャープなピークを持つ I - V 特性が得られ、switching 素子として機能することが判明した。そのときの switching の ON-OFF 比 I_1/I_0 は 100,000:1 に及び、switching 素子として申し分がないと言える。動作電力も 10nW 程度で、現在の CMOS を凌駕する。strong coupling の場合であっても図 3(b)に示されるように、弱結合の場合に比較して、準位のエネルギー幅が広がったことにより、ピークがなだらかになっているが、この状態でも、switching 動作は完全に機能することがわかる。また strong coupling limit の時には、挟まれた分子のエネルギー準位は遍歴電子との強い結合によって誘起されたエネルギー準位の広がりによって、ほとんど連続準位になっている。従って、素子の I - V 特性があたかも分子がないかのようなオーミック・コンタクトのよ

うになることが期待される。図 3(c)に示されたように、我々は期待されたオーミックな I - V 特性の結果を得た。一方、結合定数に現象論的に磁歪などを取り込めるように、繰りこまれた結合定数を定義して、その比に対する magnetoresistance (MR) 比を求めた結果を図 3(d)に示す。MR 比を実験で測定出来れば、この図から、繰りこまれた結合定数の比を求める事が可能になる。MR 比は、図中の綺麗な式で表現できることも分かった。この関数形は、繰りこまれた結合定数を屈折率と見なすと電磁波の振幅反射係数の形と同じである。すなわち、MR 比は左側電極から右側電極への遍歴 d 軌道電子の振幅反射係数と見なすことが出来ると言うことが今回の研究でわかった。ここまでは理論結果で

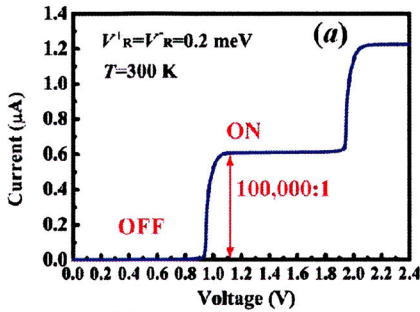


図 3(a) weak coupling の場合

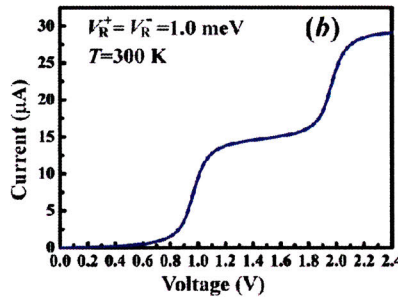


図 3(b) strong coupling の場合

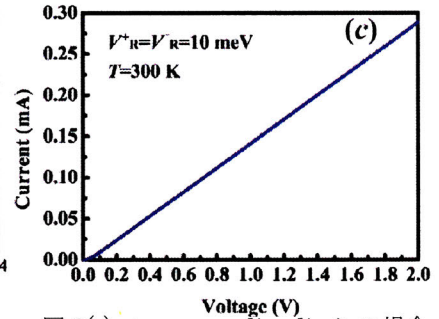


図 3(c) strong coupling limit の場合

ある。実際にこのデバイスが作製可能であることを検証するために、SQCS 素子を試作した。SQCS 素子は PEN (polyethylenenaphthalate) 上に磁場で蒸着した Ni 電極をクロス上に配置して、電極間に P3HT (poly-3-hexylthiophene) と PCBM (6,6-phenyl C61-butyric acid methyl ester) をブレンドしたものを挟んで、PMMA (polymethyl metacrylate) で固定して作成した。図 4(a)に Ni/P3HT:PCBM/Ni スピン量子十字構造素子の室温での I - V 特性を示す。接合面積は $16 \times 16 \text{ nm}^2$ のナノ接合である。

図 4(a)から、わかるようにオーミック特性が得られており、その抵抗は 32Ω である。このナノ接合を有する Ni/P3HT:PCBM/Ni スピン量子十字構造素子の I - V 特性と大きな接合面積を持つ従来型のものを比較するために接合面積が $200 \times 200 \mu\text{m}^2$ の Ni/P3HT:PCBM/Ni 素子を作製した。図 4(b)にその素子の室温での I - V 特性を示す。図からわかるように非線形な I - V 特性が得られる。これは有機半導体に典型的な I - V 特性と同じ振る舞いである。すなわちバリスティック伝導になっておらず、空間制限電流が流れている。したがって、スピン量子十字構造素子がナノ接合を作製できたことにより、図 4(a)ではバリスティック伝導が起きていることがわかり、それは、図 3(c)の理論結果と定性的に一致し、かつ定量的にもおおむね良い一致を得た。

第 3 章では、スピン量子十字構造素子が機能デバイスとして、スピン依存熱電池として機能するかどうかを検討した。SQCS 素子の接触部位がナノ接合であることから、接合部でのポイント・コンタクトを仮定出来る。また、熱電効果を狙うためには、熱の勾配が必要なので、ポイント・コンタクトは必須の条件である。接合がポイント・コンタクトと見なせるときに、電極の磁化が平行な場合と反平行な場合について熱電輸送特性を計算した。図 5 に SQCS 素子の熱電輸送特性(電極の磁化が平

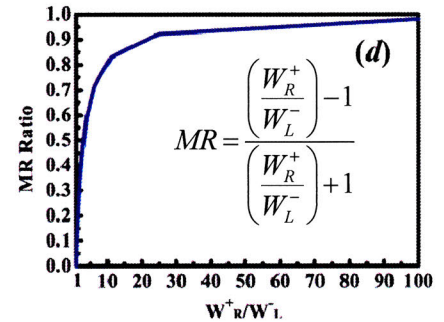


図 3(d) 繰りこまれた結合定数と MR 比

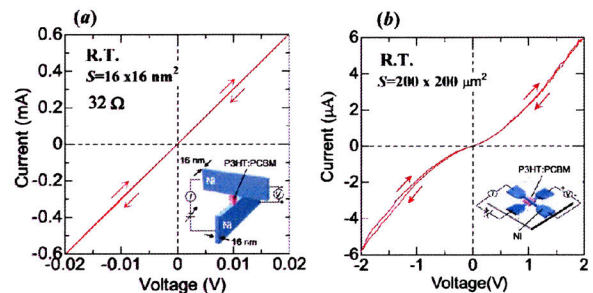


図 4(a) SQCS 素子の I - V 特性 図 4(b) 広い接合の場合

行な場合)を示す。ポイント・コンタクトでの温度差 ΔT_{pc} を 10 K から 50 K まで増加させた時に、熱起電力は 0.48 mV から 2.12 mV まで発生することがわかった。また、計算の結果、このモデルの範囲内では、電極の磁化が平行か反平行かによらず、発生する熱起電力のゼーベック係数は $42.4 \mu\text{V/K}$ であった。一方でポイント・コンタクトから取り出せる最大パワーはスピンの方向に依存する。ポイント・コンタクトでの温度差が $\Delta T_{pc}=50$ K であるときに、Ni 電極の磁化が平行な場合と Ni 電極の磁化が反平行な場合において取り出せる最大パワーはそれぞれ 5.14 pW と 0.105 pW である。したがって、ナノ LSI のような回路の中において、SQCS 素子は、スピン依存熱電池として役に立つ可能性があることが判明した。Ni 電極を用いた SQCS 素子を実際に作成して、測定を行った結果を図 6 に示す。図 6 からわかるように、実際に巨大な熱起電力 (7.7 mV) が発生した。これは、理論が正しいことを示しており、またナノデバイスの回路において、この SQCS 素子が、スピン依存熱電池として働きうることを示している。

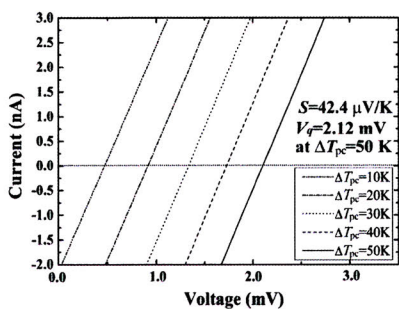


図 5 熱電輸送特性の理論 (電極の磁化が平行な場合)

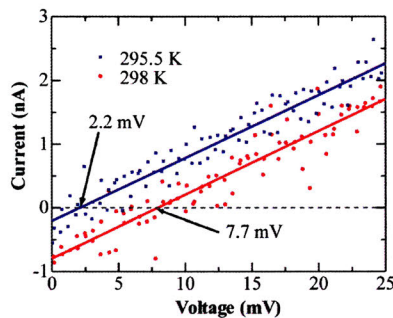


図 6 熱電輸送特性の実験結果

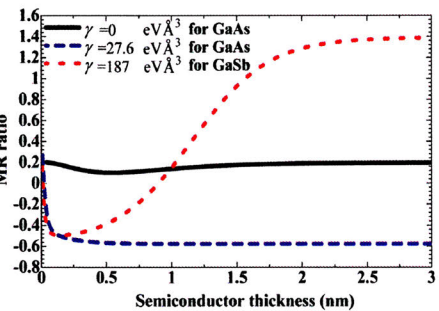


図 7 MR 比のバリア膜厚依存性

第 4 章では、SQCS 素子の接合部に分子ではなく、反転対称性の無い化合物半導体 (GaAs や GaSb) を挟んだ場合に 3 次 Dresselhaus スピン軌道相互作用が働いた場合の輸送特性について論じた。検討した化合物半導体バリアは、GaAs と GaSb とリファレンスとしてスピン軌道相互作用が無いと仮定した GaAs バリアである。図 7 に 3 つの異なる半導体バリアの膜厚に対する MR 比の依存性を示す。この結果から、膜厚によってスピン分極率を負に出来、かつ、分極率の絶対値が上がることをわかり、バリア膜厚とバリア物質を選択することによって、分極率を上げるスピントフィルターとして働くことが判明した。したがって、SQCS 素子は接合部に反転対称性の無い化合物半導体を挟むことにより、スピン分極率を上げるスピントフィルターとしても機能することを示せた。

第 5 章では、本論文全体を通した結論を述べた。本研究は、既存のリソグラフィを打破する新規な構造を持ったスピン量子十字構造素子なるものを発案し、そのスピン・電荷の輸送特性を Anderson Hamiltonian をベースに計算することによって、この素子が、室温で動作可能で、大きな switching ratio を有するデバイスであることを示した。また、実際に試作することによって、 I - V 測定を行い、計算と実験の良好一致を確認した。スピン輸送の観点からは、MR 比を簡単な公式で表現することが出来、将来、実験で MR 比が測定されれば、その結果から、繰りこまれた結合定数を見積もることが可能になった。さらにノンコリニアな場合の一般公式を Anderson Hamiltonian を用いて、求めることが出来た。また大きな熱起電力が発生することもわかり、スピン依存熱電池として使える可能性も示した。さらに接合部に反転対称性の無い半導体を挟むことにより、スピン分極率を上げるスピントフィルターとしても機能することを示せた。このようにして、新規な SQCS 素子の輸送特性の一端を明らかにし、このデバイスの将来の実用化の基礎を築いたと考える。

論文審査結果の要旨

従来の半導体素子の限界を克服する方策として、電子の電荷とスピンの自由度を共に活用したスピントロニクス素子の研究が盛んに行われている。スピントロニクス素子においても微細加工の限界は従来の素子と同様に避けがたい問題である。本論文は、微細加工限界の問題を克服する新たな方策として、強磁性金属薄膜の側面を十字形に接合することによりナノ点接触構造の作製を実現するスピン量子十字構造素子を提案し、そのスピン伝導特性および熱電特性の理論の定式化を行うと共に、試作された素子が示す特性を解析し、理論提案を検証したものである。

論文は全5章で構成されている。

第1章は序論であり、本研究の背景および論文構成を述べている。

第2章では、本研究の主題であるスピン量子十字構造素子の伝導特性の理論を構築している。

スピン量子十字構造素子は絶縁基板上に成長した強磁性金属薄膜の側面を十字形に接合し、接合部に有機分子などを挟み込んだ構造をもつ。バリスティック伝導理論に基づいて、強磁性電極と有機分子の間の電子の遷移確率が小さな接合では、室温でも電気伝導の量子化が生じ、スイッチ素子として機能することを明らかにした。有機分子を介して接合したNi電極からなる素子を試作し、その伝導特性を測定したところ線形な電流電圧特性が観測されたが、これは有機分子と電極の結合が強く電子遷移確率が大きいことこれは有機分子と電極の結合が強く電子遷移確率が大きいことに起因していることを解明した。これはスイッチ機能を発現する素子の作製に向けた指針を提供する重要な成果である。

第3章では、スピン量子十字構造素子の熱電特性を理論的に検討している。素子の強磁性電極間に温度差をつけたときに生じる熱起電力は、両電極の磁化の相対角に依存しないが、素子から取り出せる電力は磁化配置により制御できることを理論的に明らかにした。試作された素子において観測された熱起電力の大きさは、この理論を用いて定量的に理解することができる。これはスピン量子十字構造素子を熱電池に応用できることを示した重要な成果である。

第4章では、スピンフィルタ機能を発現するスピン量子十字構造素子を理論的に提案している。強磁性電極接合部に空間反転対称性をもたない化合物半導体を挟み込むと、スピン軌道相互作用により半導体中の電子の運動にスピン依存性が生じる。この現象を利用すると伝導電子のスピン分極率を向上させるスピンフィルタ機能をもたせることができることを理論的に示した。

第5章は結論であり、各章の成果をまとめている。

以上要するに本論文は、従来の半導体素子の微細加工限界を克服する新たな方策としてスピン量子十字構造素子を提案し、そのスピン伝導特性および熱電特性の理論の定式化を行うと共に、試作された素子が示す特性を解析することにより理論提案の妥当性を検証したものであり、電子工学ならびにスピントロニクスの発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。